

Caractérisation de l'endommagement de matériaux composites céramiques C/SiC par différents suivis

Characterization of damage in C/SiC ceramic composites by various monitoring means

J-P. Goulmy¹, A. Allemand^{1,2}, G. Camus¹, F. Rebillat¹

1 : Laboratoire des Composites ThermoStructuraux (LCTS), Université de Bordeaux et CNRS, Safran, CEA
3 allée de la Boétie, 33600 Pessac
e-mail : goulmy@lcts.u-bordeaux.fr

2 : CEA Le Ripault, 37260 Monts

Résumé

Les propriétés mécaniques des composites C/SiC sont principalement fonction du procédé de fabrication, de la matrice, du type de fibres de Carbone et de l'architecture fibreuse constituant la préforme. L'objectif de ce travail est de mettre en relation la microstructure et le comportement mécanique de composites C/SiC d'origines différentes, testés dans plusieurs conditions. À cette fin, une caractérisation microstructurale a été effectuée au moyen de la microscopie optique, de la microscopie électronique à balayage et de la diffraction des rayons X. Les analyses microstructurales ont permis de comprendre les différences de comportement mécanique observées entre les matériaux et de faire le lien avec les différentes techniques d'élaboration. Les essais mécaniques ont été réalisés à température ambiante avec divers suivis de l'endommagement (émission acoustique, résistivité électrique et cycles interposés de déchargement/rechargement).

Abstract

Mechanical properties of C/SiC composites are mainly a function of the matrix manufacturing process, the C fibers used and the fibrous architecture into the preform. The objective of this work is to relate the microstructure and mechanical behaviour of C/SiC composites of different origins, tested under several conditions. For this purpose, a microstructural characterization has been carried out using Optical Microscopy, Scanning Electron Microscopy and X-ray Diffraction. The microstructural identifications helped to understand the observed differences in mechanical behaviour between the materials and to relate them to the different processing techniques. Mechanical tests were carried out at room temperature with various damage monitoring means (acoustic emission, electrical resistivity and interposed unloading/reloading cycles).

Mots Clés : Composites, C/SiC, Suivi d'endommagement, résistivité électrique, émission acoustique

Keywords : Composites, C/SiC, Damage monitoring, electrical resistivity, acoustic emission

1. Introduction

Les composites de type C/SiC (fibres de carbone et matrice de carbure de silicium) sont parmi les plus performants en termes de tenue mécanique tout en étant relativement légers et d'un coût moins élevé que les composites SiC/SiC (fibres de carbure de silicium et matrice de carbure de silicium). En outre, leur tenue à l'oxydation, bien que moins bonne que celles des composites SiC/SiC, est nettement meilleure que celle des composites C/C (fibres de carbone et matrice de carbone). Leurs propriétés mécaniques sont notamment fonctions du procédé d'élaboration, des composants et de l'architecture du composite.

L'émission acoustique représente un moyen de caractérisation connu pour suivre le développement de l'endommagement des matériaux composites. L'application de la résistivité électrique à ces matériaux est quant à elle une technique relativement récente, en pleine expansion [1]–[4]. Cette technique a cependant très peu été utilisée pour déterminer l'endommagement des matériaux

composites C/SiC. Contrairement à l'émission acoustique pour laquelle il faut solliciter le matériau pour créer un endommagement perceptible, la résistivité électrique permet de caractériser un état d'endommagement sans forcément appliquer de nouvelles sollicitations. De plus, l'évolution de la résistance électrique est également un moyen de suivi très prometteur permettant d'estimer en temps réel, (i) la réduction de section des fibres de carbone, et (ii) la consommation de l'interphase située entre les fibres et la matrice, et donc la proportion d'endommagement du matériau dans des conditions oxydantes.

D'après les mesures de résistivité électrique des constituants des composites C/SiC (Tableau 1), le courant circule préférentiellement dans les fibres et l'interphase. Ainsi, il semble possible de suivre un endommagement des fibres et de l'interphase. En revanche, d'après ces valeurs, la mesure de résistivité électrique pourrait ne pas être sensible à la fissuration matricielle. Cette technique de caractérisation pourrait donc être adaptée au suivi de l'endommagement de composites C/SiC sous atmosphère oxydante puisque l'interphase est l'un des principaux constituants endommagé dans ces cas de sollicitation [5]. Cette technique présente donc a priori un grand intérêt pour des contrôles de santé matière, en maintenance aéronautique ou en continu en fonctionnement.

L'objectif de ce travail est de déterminer les propriétés générales et le comportement de composites C/SiC mis en forme par divers procédés, sous diverses sollicitations. Les essais sont réalisés à température ambiante avec un suivi de l'endommagement réalisé à l'aide de plusieurs outils : émission acoustique, résistivité électrique et corrélation d'images. La comparaison de ces trois matériaux présente deux intérêts majeurs. Premièrement, il est possible d'évaluer l'impact du procédé d'élaboration et de l'architecture du composite sur les propriétés mécaniques. Deuxièmement, cette comparaison permet d'évaluer la capacité des différentes méthodes de suivi à détecter les divers endommagements présents dans ces matériaux.

	Fibre de C	SiC-CVD	Interphase PyC	Si libre
Résistivité ($\Omega.m$)	$1.7 \cdot 10^{-5}$ [6]	1-100 [10] 0.3 [7] 0.1 [8]	$1.5 \cdot 10^{-5}$ [7] $3.3 \cdot 10^{-5}$ [8] $4.5 \cdot 10^{-5}$ [9]	$5 \cdot 10^{-2}$ [10]
Surface typique dans le composite relative à la surface de PyC	10	20	1	2
R/R_{pyc} (ordre de grandeur)	0.5	10^3	1	1000

Tableau 1. Valeurs typiques de résistivité électrique des différents constituants d'un composite C/SiC élaboré par MI [6]-[10].

2. Matériaux, essais et techniques de suivi d'endommagement

Trois composites C/SiC élaborés à partir de tissus de carbone sont comparés et présentés dans le Tableau 2. Le premier est un matériau fourni par le groupe allemand SGL, il s'agit d'un composite 2D, élaboré par RMI. Il présente la particularité d'avoir une porosité relativement faible (6%) et du silicium libre réparti sous forme de « poches ». Le deuxième est un matériau fourni par Safran Ceramics, il est élaboré par CVI et présente une architecture 2D interliée et une porosité plus élevée, de l'ordre de 10 %. Le troisième composite a été élaboré par MT Aerospace. Il s'agit d'un composite composé d'un empilement de tissus 2D orientés à $[0/90/\pm 45^\circ]$, fabriqué par CVI et qui possède une porosité de 14%. Les trois composites ont une interphase de pyrocarbone entre les fibres et la matrice d'une épaisseur de 0,5 à 1 μm .

Il est à noter que des observations faites au Microscope Electronique à Balayage ont permis de révéler la présence de SiC en lieu et place du pyrocarbone autour de certaines fibres du matériau SGL (Figure 1). Le Silicium introduit lors de l'étape d'imprégnation du métal liquide du procédé

RMI a, semble-t-il, réagit avec l'interphase de pyrocarbone pour former du carbure de silicium pouvant localement générer des liaisons fortes entre les fibres et la matrice.

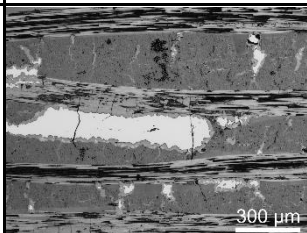
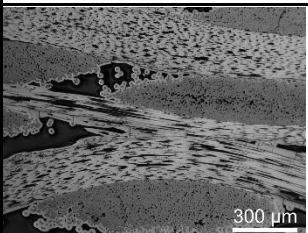
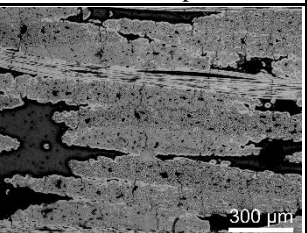
Fournisseur	SGL	Safran Ceramics	MT Aerospace
Microstructure			
Procédé d'élaboration	RMI	CVI	CVI
Architecture	2D tissé (0/90)	2D tissé inter lié (0/90)	2D tissé stratifié (0/90/±45)
Épaisseur de SiC surface (µm)	66 ± 9	160 ± 60	63 ± 22
Porosité (%)	6 ± 1	9.5 ± 1	14 ± 1
Densité apparente	1.89 ± 0.02	2.12 ± 0.04	2.06 ± 0.02
Densité vraie	2.00 ± 0.01	2.35 ± 0.02	2.41 ± 0.02
Taille des fibres (µm)	7 ± 0.5	7.1 ± 0.5	7 ± 0.5
Nature des fibres	SIGRASIC® (supposé)	PX35	Ex-PAN
Épaisseur PyC	~ 0.500 µm	~ 1 µm	~ 0.500 µm
Densité de fissuration (fils)	1 fissure / 75 µm	1 fissure / 150 µm	1 fissure / 75 µm
Fibres de Carbone (%)	~ 60	~ 43	~ 55
Pyrocarbone (%)	~ 10	~ 11	~ 8
Carbone (Matrice) (%)	~ 14	0	0
SiC (%)	~ 5	~ 29	~ 23
Si libre (%)	~ 5	0	0

Tableau 2. Tableau récapitulatif des propriétés microstructurales des trois composites C/SiC : SGL, Safran ceramics et MT Aerospace.

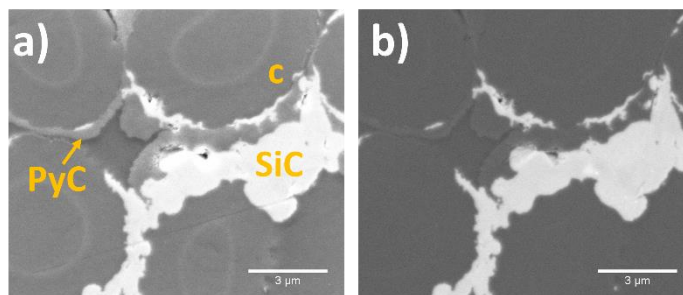


Figure 1. Cliché obtenu au microscope électronique à balayage de fibres du matériau SGL obtenus en, a) électrons secondaires, b) électrons rétrodiffusés.

Pour réaliser les mesures de résistance électrique, un courant continu de 500 mA est envoyé entre les contacts externes de l'éprouvette à l'aide d'une alimentation AGILENT E3644A. L'intensité de 500 mA a été sélectionnée car elle permet d'obtenir à la fois une bonne stabilité dans le temps et un faible échauffement de l'éprouvette ($\Delta T < 1^\circ\text{C}$). Le montage utilisé met en jeu une résistance R_{shunt} qui permet d'améliorer la précision des mesures. La valeur de résistance R_{shunt} , prise égale à 10 Ω , détermine l'intensité qui traverse l'éprouvette. La tension aux bornes de la résistance R_{shunt} est mesurée en continu en plus de celle entre les contacts internes de l'éprouvette $R_{\text{éprouvette}}$ en utilisant une acquisition HP 3852. Ainsi, la résistance de l'éprouvette est obtenue par comparaison avec une résistance de très grande stabilité ce qui permet de s'affranchir de l'influence de possibles variations du courant délivré lors d'essais de longue durée.

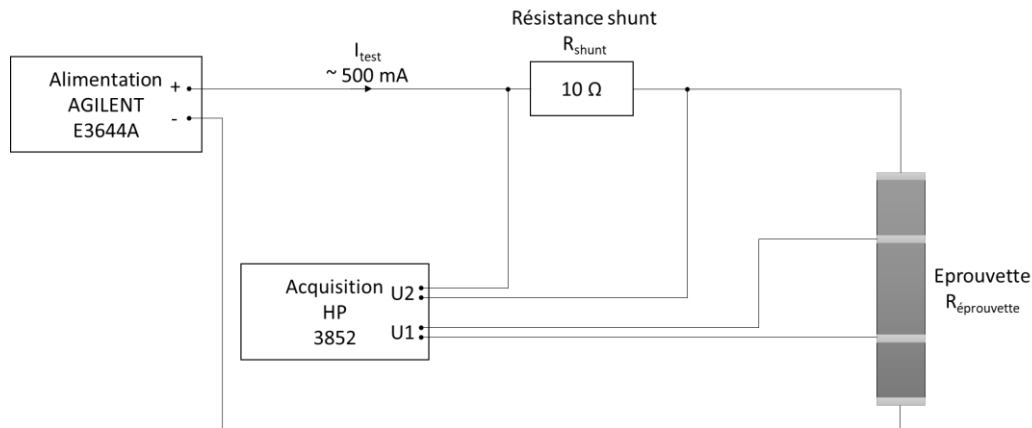


Figure 2. Schéma électrique mis en place pour les mesures de résistivité sur composite C/SiC.

Les mesures d'émission acoustique sont réalisées à l'aide d'un capteur PICO de type résonnant placé sur l'éprouvette. Ces capteurs présentent l'avantage de disposer d'une bonne sensibilité entre 250 et 750 kHz, avec une fréquence de résonance proche de 450 kHz. Le capteur est connecté à un pré-amplificateur de 40 dB, lui-même relié à une chaîne d'acquisition MISTRAS (Physical Acoustics). Le logiciel d'acquisition (MISTRAS également) calcule et enregistre en temps réel les paramètres descripteurs de la forme du signal.

3. Résultats

3.1 Propriétés mécaniques

Dans un premier temps, il est proposé de s'intéresser uniquement au comportement mécanique des trois matériaux en traction et à température ambiante (Figure 3). Le comportement apparaît comme étant très varié selon la nature du composite. La Figure 4 présente une comparaison des propriétés mécaniques des différents matériaux étudiés. Sont représentés pour chacun des matériaux, le module d'Young, la contrainte en fin de linéarité (écart pris à $5 \cdot 10^{-5}$ mm/mm), la déformation en fin de linéarité, la contrainte à rupture et la déformation à rupture. Une moyenne des données de la bibliographie est également rapportée (lorsque cela a été possible). Cette figure montre que les propriétés dans le domaine pseudo-élastique sont relativement similaires pour les trois matériaux malgré la première impression que peu procurer l'observation des courbes monotones. En revanche, à rupture, les propriétés du matériau SGL sont largement inférieures, d'un rapport 4 environ, par rapport aux deux autres matériaux. Les liaisons fortes créées lors du procédé entre la matrice et les fibres semblent à l'origine de cette rupture prématurée (par rapport au potentiel des fibres).

En observant les données de la littérature, il apparaît que la contrainte à rupture en traction des matériaux MI est régulièrement inférieure au matériaux élaborés par CVI. Les auteurs observent généralement deux phénomènes qui peuvent avoir un impact sur les propriétés mécaniques. Premièrement, certaines fibres de Carbone, lorsqu'elles ne sont pas protégées ou mal protégées par le pyrocarbone sont partiellement transformées en SiC. Le nombre de fibres saines initialement contenues dans le matériau est alors amoindri. Deuxièmement, l'interphase de pyrocarbone peut-être consommée par le silicium pour former du carbure de silicium au cours du procédé de fabrication. Bien que cette interphase protège correctement les fibres, une liaison forte est créée entre les fibres et la matrice. L'interphase n'étant plus présente elle ne peut dévier les fissures à la surface des fibres. C'est ce deuxième aspect qui a été observé dans le cas de ces travaux.

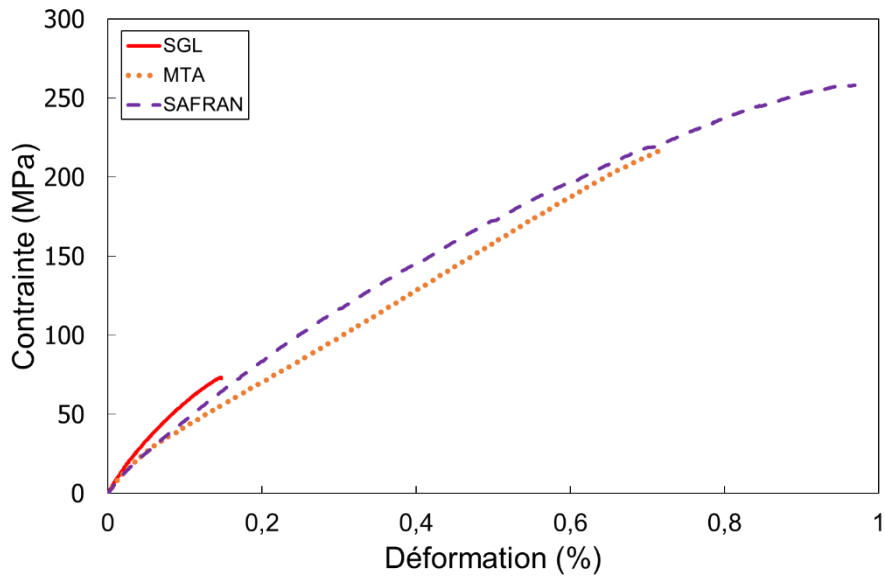


Figure 3. Exemple de courbes monotones obtenues à température ambiante des composite C/SiC SGL, Safran 2008 et MTA.

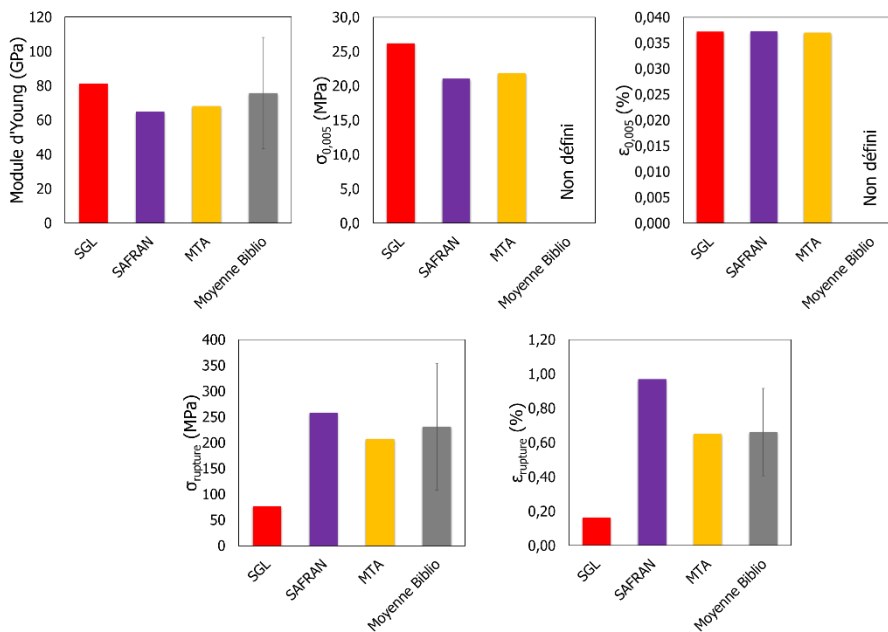


Figure 4. Comparaison des propriétés mécaniques en traction, à température ambiante, des différents matériaux investigués.

La Figure 5 montre des observations typiques effectuées en MEB faites sur un échantillon composite SGL C/SiC fracturé en traction. Des macropores, une matrice Si-SiC et des fibres peuvent être observés au sein du fil. Les fibres contenues dans le plan de l'image sont caractéristiques du lien fort qui existe entre les fibres et le carbure de silicium. Par conséquent, le taux local de renfort susceptible de supporter la charge est abaissé. Le taux de fibres extraites du plan de la fissure matricielle est très faible. Il indique une absence de déviation des fissures matricielles en mode II. Ainsi, le processus de décohésion fibre/matrice contribue faiblement à l'endommagement du matériau.

Pour mettre en évidence ces observations, l'hypothèse peut être faite qu'à la fin de l'essai, seules les fibres longitudinales contribuent aux propriétés mécaniques du matériau. La fraction volumique théorique des fibres supportant la charge à la fin de l'essai V_{fth} peut être calculée en utilisant la formule suivante :

$$V_{fth} = \frac{\sigma_s}{\sigma_{sf}} \quad \text{Eq. 1}$$

Où σ_{sf} est la contrainte à rupture théorique des fibres fournie par le fabricant et σ_s est la contrainte à rupture du composite.

Une valeur de 1.53 % est obtenue par ce calcul (soit 7.5 % des fibres dans la direction de sollicitation) pour le matériau SGL. Cette dernière est comparée aux données de la littérature Figure 6. Sur ce graphique, la fraction volumique théorique de fibres reprenant la charge est représentée en fonction de la fraction volumique de fibres dans le sens long du composite. Pour toutes les données, la fraction volumique théorique des fibres reprenant la charge est inférieure à la fraction volumique effective des fibres dans le sens de la charge déterminée sur le matériau brut d'élaboration. De plus, les composites CVI donnent le meilleur rapport par comparaison aux composites RMI où la fraction volumique des fibres prenant la charge est particulièrement faible (~21 % pour CVI contre ~7.5 % pour RMI). Cette illustration confirme que les fibres dans le matériau C/SiC RMI reçu sont particulièrement endommagées pendant le processus de fabrication. Il est à noter que les valeurs obtenues pour le matériau MTA et Safran sont également en accord avec la littérature.

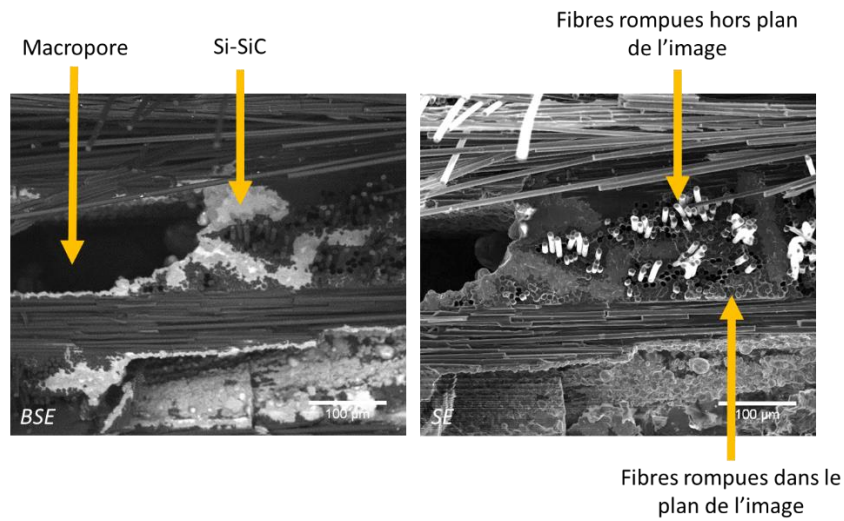


Figure 5. Observations MEB du composite SGL après rupture en traction à température ambiante.

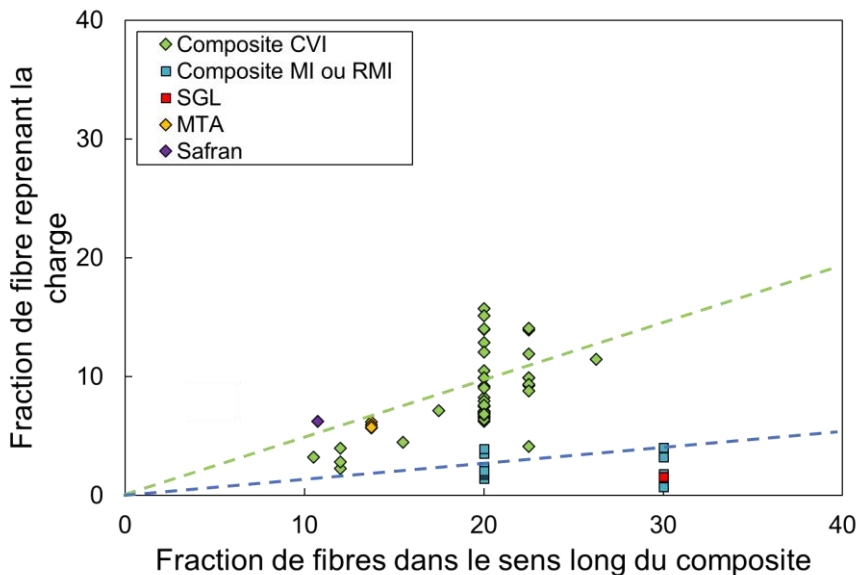


Figure 6. Influence du procédé d'élaboration sur la capacité des fibres à reprendre la charge lors d'essais de traction à température ambiante.

3.2 Evolution des suivis d'endommagement

L'évolution de l'émission acoustique et la résistance électrique sont à présent comparées pour les essais de traction à température ambiante réalisés sur le matériau SGL. Pour cela il est proposé de suivre l'évolution de la résistance électrique et du nombre de coups calculé en émission acoustique. La Figure 7 présente l'évolution de la contrainte et de la résistance électrique en fonction du temps au cours d'un essai de traction mené sur le matériau SGL. Après environ 250 secondes d'essai ($\varepsilon = 0.14\%$), l'éprouvette présente un événement dommageable pour le composite ; la contrainte maximale ne peut plus être augmentée. La rupture totale de l'éprouvette se produit après 1050 secondes d'essai. A première vue, il semble que la variation de résistance électrique soit principalement liée à la rupture des fibres dans le composite ce qui est cohérent avec la résistivité électrique des différents constituants exposés en introduction. Cependant, il apparaît que la variation de la résistance au cours des premiers instants présente trois régimes distincts (Figure 8.a) qui correspondent également à trois zones définies en émission acoustique (Figure 8.b).

- (1) Lorsque la déformation est comprise entre 0 et 0.017 % : le comportement du matériau est linéaire. La résistance électrique augmente de façon linéaire avec la déformation. Dans le même temps, le nombre de coups est nul et n'évolue pas. La déformation $\varepsilon_{\text{onset}} = 0.017\%$, à partir de laquelle le nombre de coups évolue, correspond au début de la fissuration matricielle [11], [12]. L'augmentation de la résistance électrique ne serait donc liée qu'à la réorganisation par déformation élastique des constituants et à la réouverture des fissures induites lors de l'élaboration.
- (2) Entre 0.017 % et 0.145 % de déformation : le comportement du matériau est non linéaire. La résistance augmente de façon un peu plus rapide et de façon non-linéaire. Parallèlement, le nombre de coups augmente de façon continue. L'accroissement de l'émission acoustique permet de confirmer que l'augmentation de la résistance électrique est liée, dans ce régime, à un endommagement mécanique avec une fissuration matricielle et des décohésions.
- (3) Quand la déformation est supérieure à 0.145 % : le matériau a atteint ses propriétés mécaniques maximales et le composite présente une fissure importante au sein de la matrice. La résistance électrique augmente significativement tout comme le nombre de coups. Ces augmentations notables correspondent à la rupture des fibres et à la ruine du matériau.

La résistance électrique mesurée n'est donc pas uniquement liée à la fraction volumique des fibres mais également à la fissuration matricielle et à la décohésion fibre/matrice. Cette technique permet ainsi de suivre l'endommagement de structures composites C/SIC.

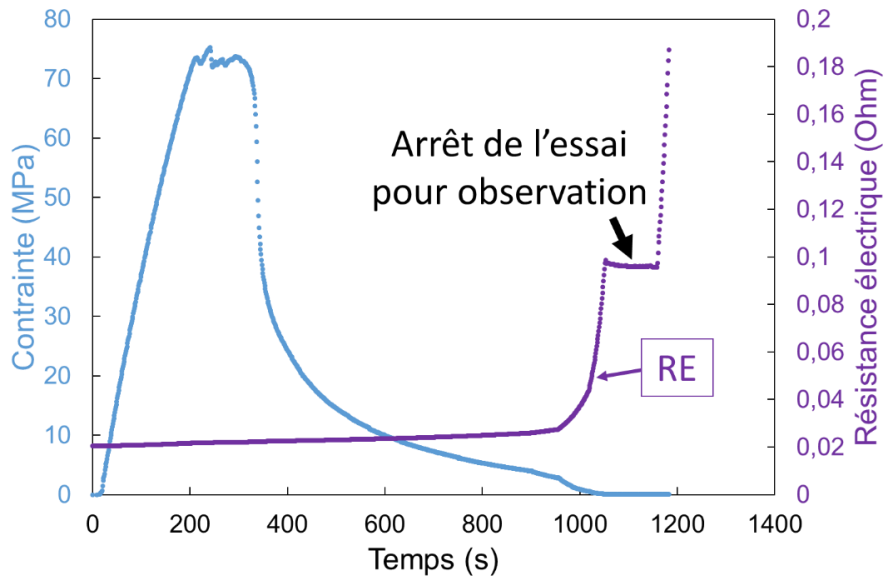


Figure 7. Evolution de la contrainte et de la résistance électrique au cours d'un essai de traction.

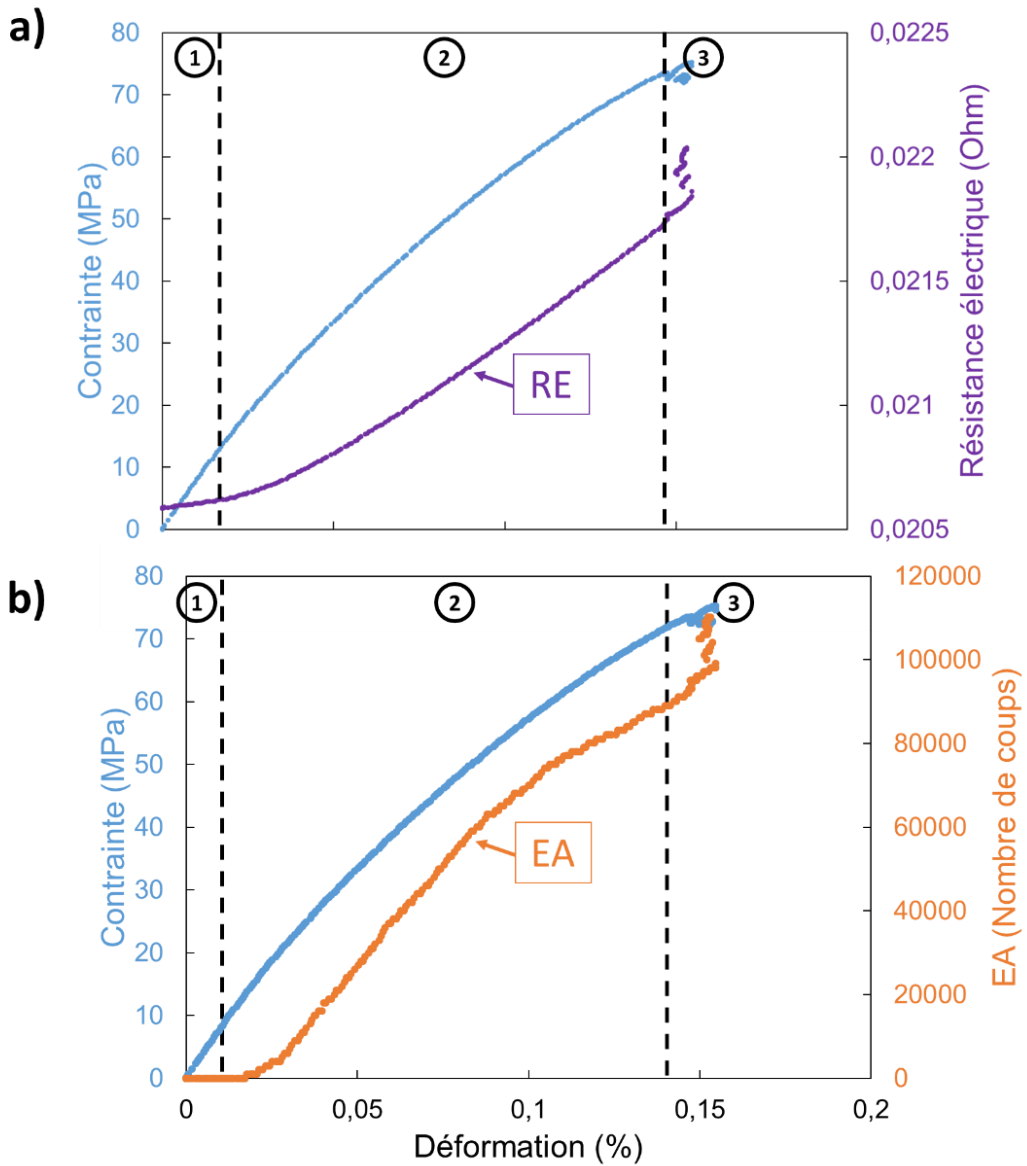


Figure 8. a) Evolution de la résistance électrique ; b) évolution du nombre de coups durant l'essai monotone mené à température ambiante sur le matériau SGL.

4. Conclusion et perspectives

Ces travaux montrent que la mesure de résistance électrique est un moyen efficace pour suivre l'endommagement de matériaux composites C/SiC en continu mais aussi après déchargement. La technique doit être étendue à d'autres matériaux. Les mesures réalisées seront à comparer avec les trois composites C/SiC afin d'évaluer si les différences de comportement mécanique observées sont également visibles par mesure de résistance électrique.

Références

- [1] C. E. Smith, G. N. Morscher, et Z. H. Xia, « Monitoring damage accumulation in ceramic matrix composites using electrical resistivity », *Scr. Mater.*, vol. 59, n° 4, p. 463-466, août 2008.
- [2] C. E. Smith, G. N. Morscher, et Z. Xia, « Electrical Resistance as a Nondestructive Evaluation Technique for SiC/SiC Ceramic Matrix Composites Under Creep-Rupture Loading: Resistance of SiC/SiC Under Creep-Rupture Loading », *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, vol. 8, n° 2, p. 298-307, mars 2011.
- [3] C. Simon, F. Rebillat, V. Herb, et G. Camus, « Monitoring damage evolution of SiCf/[SiBC]m composites using electrical resistivity: Crack density-based electromechanical modeling », *Acta Mater.*, vol. 124, p. 579-587, févr. 2017.
- [4] G. N. Morscher et N. A. Gordon, « Acoustic emission and electrical resistance in SiC-based laminate ceramic composites tested under tensile loading », *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 37, n° 13, p. 3861-3872, oct. 2017.
- [5] F. Lamouroux, « Etude du comportement en environnement oxydant des matériaux composites 2DC/SiC », Bordeaux 1, 1992.
- [6] H. Mei et L. Cheng, « Damage analysis of 2D C/SiC composites subjected to thermal cycling in oxidizing environments by mechanical and electrical characterization », *Mater. Lett.*, vol. 59, n° 26, p. 3246-3251, nov. 2005.
- [7] C. Simon, « Méthodologie pour le durcissement et l'accélération d'essais sur composites à matrice céramique aéronautiques », phdthesis, Université de Bordeaux, 2017.
- [8] Y. Katoh, T. Nozawa, L. L. Snead, T. Hinoki, et A. Kohyama, « Property tailorability for advanced CVI silicon carbide composites for fusion », *Fusion Eng. Des.*, vol. 81, n° 8, p. 937-944, févr. 2006.
- [9] P. A. Graham, G. Schindler, G. Duesberg, T. Lutz, et W. Weber, « An investigation of the electrical properties of pyrolytic carbon in reduced dimensions: Vias and wires », *J. Appl. Phys.*, vol. 107, p. 114316-114316, juill. 2010.
- [10] G. N. Morscher, C. Baker, et C. Smith, « Electrical Resistance of SiC Fiber Reinforced SiC/Si Matrix Composites at Room Temperature during Tensile Testing », *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, vol. 11, n° 2, p. 263-272, mars 2014.
- [11] M. Moevus, « Mécanismes d'endommagement, émission acoustique et durées de vie en fatigue statique du composite SiC/[Si-B-C] aux températures intermédiaires (<800 C) », Thèse doctorat, Institut national des sciences appliquées de Lyon, Lyon, France, 2007.
- [12] E. Maillet, « Identification des mécanismes d'endommagement et prévision de la durée de vie des composites à matrice céramique par émission acoustique », Thèse de doctorat, Institut national des sciences appliquées de Lyon, Lyon, France, 2012.